

FeAl₂O₄ のスピングラス相に見られる交換バイアス効果

Exchange Bias Effect Shown in Spin-Glass Phase of FeAl₂O₄ Spinel Oxide

○ 中根 茂行¹、石井 聡²、名嘉 節¹ (1. 物質・材料研究機構、2. 東京電機大学)

○ Takayuki Nakane¹, Satoshi Ishii² and Takashi Naka¹

(1. National Institute for Materials Science, 2. Tokyo Denki Univ.)

E-mail: NAKANE.Takayuki@nims.go.jp

緒言

スピネル型構造は、遷移金属酸化物の典型的な結晶構造の一つであり、構造中に、4 配位と 6 配位という 2 種類の陽イオンサイトが存在し、各陽イオンが周辺の酸素とそれぞれ四面体と八面体のユニットを形成しているところに大きな特徴がある。スピネル型遷移金属酸化物の物性は、この 2 種類の陽イオンサイトに位置する金属イオンの電子状態に支配されるため、物性研究では、各陽イオンサイトを組成式 AB₂O₄ に関連付けて、それぞれ、A サイト、B サイトと区別して議論する。

我々は近年、この 2 つ陽イオンサイト間に起こるサイト置換現象に注目し、サイト置換が誘起する物性の変化について様々な研究を行い、その結果を報告してきた。昨年は、微量の Co²⁺ を置換添加した ZnAl₂O₄ の蛍光現象について議論し、蛍光現象が B サイトに優先的に配置される Co²⁺ に由来する可能性を述べた。一方、春季学会では、詳細な研究が行われていなかった FeAl₂O₄ の磁性について報告し、この物質の低温磁性が、Fe²⁺ と Al³⁺ の間に生じるサイト置換によってスピングラス化するモデルを提案した。本発表では、この FeAl₂O₄ のサイト置換が誘起する磁性変化に関する、より詳細な結果を報告するとともに、新たに見出した交換バイアス効果と見られる現象について報告する。

実験

FeAl₂O₄ 試料は、Fe²⁺ の酸化を極力防げる石英管封入法で作製した。出発原料となる FeO と γ-Al₂O₃ の粉末を定比で混合し、ペレット化したものをアルミナ坩堝に入れ、石英管に封入した後、電気炉で 24 時間加熱した。試料のサイト置換量は、この時の加熱温度と加熱後の徐冷速度に強く依存するので、FeAl₂O₄ のサイト置換量と磁性の関係を議論する本研究では、加熱温度を 900 ~ 1200 °C、徐冷速度を 5 °C/hour 以下の範囲内で制御し、加熱温度や冷却速度が異なる試料を作製し、その特性を比較することにした。

結果と考察

作製した試料は、900 °C で焼結した試料以外は全て単一相と見なせる。これらの試料のサイト置換量とガラス転移温度をプロットした結果が Fig.1 である。両者には、明らかな関連性があり、そこから我々は、A サイトと B サイトにある各 Fe²⁺ それぞれの磁気秩序が競合し、結果的に試料全体の磁性がスピングラス化するモデルを提案するに至った。

ここで改めて注目すべき点が、スピネル構造の特徴である。スピネル構造では、A サイトと B サイトの陽イオンが一つの酸素を介して繋がっている。我々はここに注目し、高サイト置換試料では、異なる磁気秩序に属する A サイトと B サイトの Fe²⁺ が酸素を介して結合する可能性があり、A サイトの磁気秩序を反強磁性的、B サイトを強磁性的と仮定すれば、ここに交換結合が生じて交換バイアス効果が誘起されると予想した。その可能性を検証した結果が Fig.2 である。図のような交換磁気異方性と見られる現象を、本研究で作製した試料全てで再現性良く観測することに成功した。この交換磁気異方性のシフト量は、サイト置換量とも相関がある。

これらの結果から、サイト置換が内在するスピネル型磁性酸化物では、結晶内に交換結合が生じる可能性があることが明らかになった。

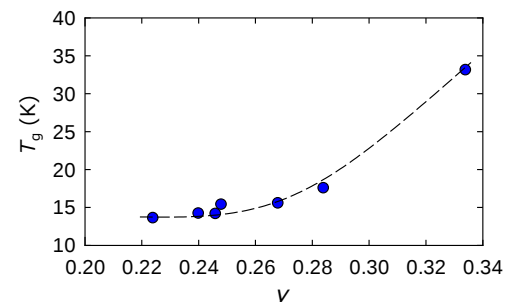


Fig. 1 Spin glass temperature, T_g , of $(\text{Fe}_{1-y}\text{Al}_y)(\text{Al}_{2-y}\text{Fe}_y)\text{O}_4$ plotted against the inversion parameter, y .

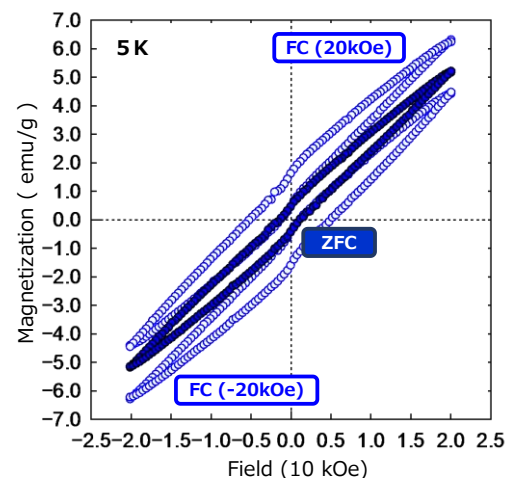


Fig. 2 Magnetic hysteresis curves of FeAl₂O₄ heated at 900 °C and cooled with the rate of 25 °C/hour.